

(12) DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DE COOPÉRATION  
EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la Propriété  
Intellectuelle  
Bureau international



(43) Date de la publication internationale  
23 août 2001 (23.08.2001)

PCT

(10) Numéro de publication internationale  
**WO 01/60944 A2**

(51) Classification internationale des brevets<sup>7</sup> :  
C09K 11/85, C01F 17/00, G01T 1/202

LOEF, Edgar, Valentijn, Dieuwer [NL/NL]; Stootblok  
60, NL-3071 AP Rotterdam (NL).

(21) Numéro de la demande internationale :  
PCT/EP01/01837

(74) Mandataires : VIGNESOULT, Serge etc.; Saint-Gobain  
Recherche, 39, quai Lucien Lefranc, F-93300 Aubervilliers  
(FR).

(22) Date de dépôt international :  
16 février 2001 (16.02.2001)

(81) États désignés (*national*) : AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ,  
BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE,  
DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,  
ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,  
LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO,  
NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR,  
TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(25) Langue de dépôt : français

(26) Langue de publication : français

(30) Données relatives à la priorité :  
1014401 17 février 2000 (17.02.2000) NL

(84) États désignés (*régional*) : brevet ARIPO (GH, GM, KE,  
LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), brevet eurasien  
(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), brevet européen  
(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU,  
MC, NL, PT, SE, TR), brevet OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI,  
CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(71) Déposant (*pour tous les États désignés sauf US*) :  
STICHTING VOOR DE TECHNISCHE WETEN-  
SCHAPPEN [NL/NL]; Van Vollenhovenlaan 661,  
NL-3527 JP Utrecht (NL).

(72) Inventeurs; et

(75) Inventeurs/Déposants (*pour US seulement*) : DOREN-  
BOS, Pieter [NL/NL]; Leeuwendaallaan 107, NL-2281  
GM Rijswijk (NL). VAN EIJK, Carel, Wilhelm, Eduard  
[NL/NL]; Gerbrandylaan 48, NL-2625 LS Delft (NL).  
GÜDEL, Hans-Ulrich [CH/CH]; Oberriedstrasse 46,  
CH-3174 Thörishaus (CH). KRÄMER, Karl, Wilhelm  
[CH/CH]; Tannenweg 20, CH-3012 Bern (CH). VAN

Publiée :

— sans rapport de recherche internationale, sera republiée  
dès réception de ce rapport

En ce qui concerne les codes à deux lettres et autres abrégia-  
tions, se référer aux "Notes explicatives relatives aux codes et  
abréviations" figurant au début de chaque numéro ordinaire de  
la Gazette du PCT.

(54) Title: SCINTILLATOR CRYSTALS, METHOD FOR MAKING SAME, USE THEREOF

(54) Titre : CRISTAUX SCINTILLATEURS, PROCÉDE DE FABRICATION, APPLICATION DE CES CRISTAUX

(57) Abstract: The invention concerns an inorganic scintillator material of general composition  $M_{1-x}Ce_xCl_3$ , wherein: M is selected among lanthanides or lanthanide mixtures, preferably among the elements or mixtures of elements of the group consisting of Y, La, Gd, Lu, in particular among the elements or mixtures of elements of the group consisting of La, Gd and Lu; and x is the molar rate of substitution of M with cerium, x being not less than 1 mol % and strictly less than 100 mol %. The invention also concerns a method for growing said monocrystalline scintillator material, and the use of said scintillator material as component of a scintillating detector in particular for industrial and medical purposes and in the oil industry.

(57) Abrégé : L'invention a trait à un matériau scintillateur inorganique de composition générale  $M_{1-x}Ce_xCl_3$ , où M est choisi parmi les lanthanides ou les mélanges de lanthanides, de préférence parmi les éléments ou les mélanges d'éléments du groupe: Y, La, Gd, Lu, notamment parmi les éléments ou les mélanges d'éléments du groupe: La, Gd, Lu, et où x est le taux molaire de substitution de M par du cérium, avec x supérieur ou égal à 1 mole % et strictement inférieur à 100 moles %. L'invention concerne également un procédé de croissance d'un tel matériau scintillateur monocristallin, et l'utilisation d'un tel matériau scintillateur comme composant d'un détecteur de scintillation notamment pour des applications industrielles, médicales ou pétrolières.

WO 01/60944 A2

## CRISTAUX SCINTILLATEURS, PROCEDE DE FABRICATION, APPLICATION DE CES CRISTAUX

La présente invention concerne des cristaux scintillateurs, un procédé de  
5 fabrication permettant de les obtenir et l'utilisation desdits cristaux, notamment  
dans des détecteurs pour rayons gamma et/ou rayons X.

Les cristaux scintillateurs sont largement utilisés dans des détecteurs pour  
rayons gamma, rayons X, rayons cosmiques et particules dont l'énergie est de  
l'ordre de 1 KeV et également supérieure à cette valeur.

10 Un cristal scintillateur est un cristal transparent dans le domaine de  
longueur d'onde de scintillation, qui répond à une radiation incidente par  
l'émission d'une impulsion lumineuse.

A partir de tels cristaux, généralement de monocristaux, on peut fabriquer  
des détecteurs où la lumière émise par le cristal qui comprend le détecteur, est  
15 couplée à un moyen de détection de la lumière et produit un signal électrique  
proportionnel au nombre d'impulsions lumineuses reçues et à leur intensité. De  
tels détecteurs sont utilisés notamment dans l'industrie pour des mesures  
d'épaisseur ou de grammage, dans les domaines de la médecine nucléaire, de la  
physique, de la chimie, de la recherche pétrolière.

20 Une famille de cristaux scintillateurs connus et utilisés largement est du  
type iodure de Sodium dopé au Thallium, NaI (TI). Ce matériau scintillateur  
découvert en 1948 par Robert Hofstadter et qui est à la base des scintillateurs  
modernes reste encore le matériau prédominant dans ce domaine malgré près de  
50 années de recherches sur d'autres matériaux. Cependant ces cristaux ont une  
25 décroissance de scintillation peu rapide.

Un matériau également utilisé est le CsI, qui en fonction des applications  
peut être utilisé pur, ou dopé soit avec du Thallium (TI) soit avec du Sodium (Na).

Une famille de cristaux scintillateurs qui a connu un grand développement  
est du type germanate de Bismuth (BGO). Les cristaux de la famille BGO ont des  
30 constantes de temps de décroissance élevées, qui limitent l'emploi de ces cristaux  
à de faibles taux de comptage.

Une famille plus récente de cristaux scintillateurs a été développée dans  
les années 1990 et est du type oxyorthosilicate de Lutécium activé au cérium

LSO(Ce). Cependant ces cristaux sont très hétérogènes et ont des points de fusion très élevés (environ 2200°C).

Le développement de nouveaux matériaux scintillateurs aux performances améliorées fait l'objet de nombreuses études.

- 5 Un des paramètres que l'on cherche à améliorer est la résolution en énergie.

En effet dans la plupart des applications des détecteurs nucléaires, une bonne résolution en énergie est souhaitée. La résolution en énergie d'un détecteur de rayonnement nucléaire détermine en effet sa capacité à séparer des  
10 énergies de rayonnement très voisines. Elle est usuellement déterminée pour un détecteur donné à une énergie donnée, comme la largeur à mi hauteur du pic considéré sur un spectre en énergie obtenu à partir de ce détecteur, rapportée à l'énergie à la centroïde du pic (voir notamment : G.F Knoll, "Radiation Detection and Measurement", John Wiley and Sons, Inc, 2<sup>nd</sup> édition, p 114). Dans la suite  
15 du texte, et pour toutes les mesures effectuées, la résolution est déterminée à 662 keV, énergie de l'émission gamma principale du <sup>137</sup>Cs.

Plus la valeur de la résolution en énergie est faible, meilleure est la qualité du détecteur. On considère que des résolutions en énergie de l'ordre de 7 % permettent d'obtenir de bons résultats. Néanmoins des valeurs inférieures de  
20 résolution présentent un grand intérêt.

Par exemple, dans le cas d'un détecteur utilisé pour analyser différents isotopes radioactifs, une meilleure résolution en énergie permet une meilleure distinction de ces isotopes.

Une augmentation de la résolution en énergie est particulièrement  
25 avantageuse pour un dispositif d'imagerie médicale par exemple de type Gamma camera d'Anger ou Tomographe à Emission de Positron (TEP), car elle permet d'améliorer fortement le contraste et la qualité des images, permettant ainsi une détection plus précise et plus précoce des tumeurs.

Un autre paramètre très important est la constante de temps de  
30 décroissance de la scintillation(dite " decay time "), ce paramètre est usuellement mesuré par la méthode dite "Start Stop" ou "Multi hit method", (décrite par W.W Moses ( Nucl. Instr and Meth. A336 (1993) 253).

Une constante de temps de décroissance la plus faible possible est souhaitée, de façon à pouvoir augmenter la fréquence de fonctionnement des

- détecteurs. Dans le domaine de l'imagerie médical nucléaire, ceci permet par exemple de réduire considérablement les durée d'examens. Une constante de temps de décroissance peu élevée permet de plus d'améliorer la résolution temporelle des dispositifs détectant des évènements en coïncidence temporelle.
- 5 C'est le cas des Tomographes à Emission de Positron (TEP), où la réduction de la constante de temps de décroissance du scintillateur permet d'améliorer significativement les images en rejetant avec plus de précision les évènements non coïncidents.

En général le spectre de déclin de scintillation en fonction du temps peut  
10 être décomposé en une somme d'exponentielles caractérisées chacune par une constante de temps de décroissance

La qualité d'un scintillateur est essentiellement déterminée par les propriétés de la contribution de la composante d'émission la plus rapide.

- Les matériaux scintillateurs usuels ne permettent pas d'obtenir à la fois des  
15 bonnes résolutions en énergie et des constantes de temps de décroissance rapides.

En effet des matériaux comme le NaI(Tl) présentent une bonne résolution en énergie sous excitation gamma, d'environ 7 % mais une constante de temps de décroissance élevée d'environ 230 ns. De même CsI(Tl) et CsI(Na) ont des  
20 constantes de temps de décroissance élevées, notamment supérieures à 500 ns.

Des constantes de temps de décroissance peu élevées peuvent être obtenues avec LSO(Ce), notamment de l'ordre de 40 ns, mais la résolution en énergie sous excitation gamma à 662 keV de ce matériau est généralement supérieure à 10 %.

- 25 Récemment des matériaux scintillateurs ont été divulgués par O. Guillot-Noël et al. (" Optical and scintillation properties of cerium doped  $\text{LaCl}_3$ ,  $\text{LuBr}_3$  and  $\text{LuCl}_3$ " in Journal of Luminescence 85 (1999) 21-35). Cet article décrit les propriétés de scintillation de composés dopés au cérium tels que  $\text{LaCl}_3$  dopé par 0,57 mole % Ce ;  $\text{LuBr}_3$  dopé par 0,021 mole %, 0,46 mole % et 0,76 mole % Ce ;  
30  $\text{LuCl}_3$  dopé par 0,45 mole % Ce. Ces matériaux scintillateurs ont des résolutions en énergie assez intéressantes, de l'ordre de 7 % et des constantes de temps de décroissance de la composante rapide de scintillation assez faibles, notamment comprises entre 25 et 50 ns. Cependant l'intensité de la composante rapide de

ces matériaux est faible, notamment de l'ordre de 1000 à 2000 photons par MeV et ne permet pas leur emploi en tant que composant d'un détecteur performant.

L'objet de la présente demande porte sur un matériau susceptible de présenter simultanément une bonne résolution en énergie, notamment au moins aussi bonne que celle du NaI(Tl), une constante de temps de décroissance faible, notamment au moins équivalente à celle du LSO(Ce), et dont l'intensité de la composante rapide de scintillation est adaptée à la réalisation de détecteurs performants, notamment est supérieure à 4000 ph/MeV (photon par MeV), voire même supérieure à 8000 ph/MeV (photon par MeV).

Ce but est atteint selon l'invention par un matériau scintillateur inorganique de composition générale  $M_{1-x}Ce_xCl_3$ ,

où M est choisi parmi les lanthanides ou les mélanges de lanthanides, de préférence parmi les éléments ou les mélanges d'éléments du groupe : Y, La, Gd, Lu, notamment parmi les éléments ou les mélanges d'éléments du groupe : La, Gd, Lu,

et où x est le taux molaire de substitution de M par du cérium, nommé par la suite « taux de cérium », avec x supérieur ou égal à 1 mole % et strictement inférieur à 100 moles %.

On entend par lanthanides les éléments de transition de numéro atomique 57 à 71, ainsi que l'Yttrium (Y), comme il est usuel dans le domaine technique de l'invention.

Un matériau scintillateur inorganique selon l'invention est substantiellement constitué de  $M_{1-x}Ce_xCl_3$  et peut comprendre également des impuretés usuelles dans le domaine technique de l'invention. Les impuretés usuelles sont en général des impuretés provenant des matières premières dont le taux est notamment inférieur à 0,1%, voire même inférieur à 0,01%, et/ou des phases parasites dont le pourcentage volumique est notamment inférieur à 1%.

En effet, les inventeurs ont su montrer que les composés de  $M_{1-x}Ce_xCl_3$  définis ci-dessus, où le taux de cérium est supérieur ou égal à 1 mole % présentent des propriétés remarquables. L'émission de scintillation des matériaux selon l'invention présente une composante rapide intense (d'au moins 4000 ph/MeV) et de constante de temps de décroissance faible, de l'ordre de 25 ns. Ces matériaux présentent simultanément une excellente résolution en énergie à 662 keV, notamment inférieure à 5 %, et même à 4 %.

Ces propriétés sont d'autant plus remarquables qu'elles sont inattendues et mettent en évidence une grande discontinuité de caractéristiques à partir de 1 mole % de cérium. Cette sélection de composition est d'autant plus surprenante que les scintillateurs dopés cérium ayant de bonnes performances tels que le LSO  
5 contiennent moins de 1% de Cerium, et préférentiellement environ 0,2%.(voir par exemple M.Kapusta et al, "Comparison of the scintillation properties of LSO:Ce Manufactured by different Laboratories and of LGSO:Ce", IEEE transaction on Nuclear Science, Vol 47, N°4, August 2000).

Un matériau préféré selon l'invention est de formule  $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{Cl}_3$ .

10 Selon un mode de réalisation, le matériau scintillateur selon l'invention a une résolution en énergie inférieure à 5 %.

Selon un autre mode de réalisation, le matériau scintillateur selon l'invention a une constante de temps de décroissance rapide inférieure à 40 ns, voire même inférieure à 30 ns.

15 Selon un mode de réalisation préféré, le matériau scintillateur selon l'invention a à la fois une résolution en énergie inférieure à 5 % et une constante de temps de décroissance rapide inférieure à 40 ns, voire même inférieure à 30 ns.

De manière préférée, le taux de cérium, x, est compris entre 1 mole % et  
20 90 mole %, et même notamment supérieur ou égal à 2 mole %, voire même supérieur ou égal à 4 mole % et/ou de préférence inférieur ou égal à 50 mole %, voire même inférieur ou égal à 30 mole %.

Selon un mode de réalisation le matériau scintillateur selon l'invention est un monocristal permettant d'obtenir des pièces d'une grande transparence dont  
25 les dimensions sont suffisantes pour arrêter et détecter efficacement les rayonnements à détecter, y compris à haute énergie. Le volume de ces monocristaux est notamment de l'ordre de  $10 \text{ mm}^3$ , voire supérieur à  $1 \text{ cm}^3$  et même supérieur à  $10 \text{ cm}^3$ .

Selon un autre mode de réalisation, le matériau scintillateur selon  
30 l'invention est une poudre ou polycristal par exemple sous la forme de poudres mélangées avec un liant ou bien sous forme de sol-gel.

L'invention concerne également un procédé pour l'obtention du matériau scintillateur  $\text{M}_{1-x}\text{Ce}_x\text{Cl}_3$ , défini ci-dessus, sous forme de monocristal par méthode

de croissance Bridgman, par exemple en ampoules de quartz scellées sous vide, notamment à partir d'un mélange de poudres commerciales de  $\text{MCl}_3$  et  $\text{CeCl}_3$

L'invention concerne également l'utilisation du matériau scintillateur ci-dessus comme composant d'un détecteur de rayonnement notamment par rayons gamma et/ou rayons X.

Un tel détecteur comprend notamment un photodétecteur couplé optiquement au scintillateur pour produire un signal électrique en réponse à l'émission d'une impulsion de lumière produite par le scintillateur.

Le photodétecteur du détecteur peut notamment être un photomultiplicateur, ou bien une photodiode, ou bien un capteur CCD.

L'utilisation préférée de ce type de détecteur porte sur la mesure de rayonnements gamma ou X ; un tel système est également susceptible de détecter les rayonnements Alpha, Beta et les électrons. L'invention concerne également l'utilisation du détecteur ci-dessus dans les appareils de médecine nucléaire, notamment les Gamma caméra de type Anger et les scanners à Tomographie d'Emission de Positron (voir par exemple C.W.E. Van Eijk, "Inorganic Scintillator for Medical Imaging", International Seminar New types of Detectors, 15-19 May 1995 – Archamp, France. Publié dans "Physica Medica", Vol XII, supplément 1, Juin 96).

Selon une autre variante, l'invention concerne l'utilisation du détecteur ci-dessus dans les appareils de détection pour forage pétrolier, (voir par exemple "Applications of scintillation counting and analysis", dans "Photomultiplier tube, principle and application", chapitre 7, Philips).

D'autres détails et caractéristiques ressortent de la description ci-après de modes de réalisation préférés non limitatifs et de données obtenues sur des échantillons constitués de monocristaux selon l'invention.

Le tableau 1 présente les résultats de caractéristiques de scintillation pour des exemples selon l'invention (exemples 1 à 5) ainsi que des exemples comparatifs (exemples A à D).

x correspond au taux, exprimé en mole %, de cérium substitué à l'atome M

Les mesures sont effectuées sous une excitation de rayon  $\gamma$  à 662 keV. Les conditions de mesures sont précisées dans la publication de O. Guillot-Noël, citée plus haut.

L'intensité d'émission est exprimée en photon par MeV.

L'intensité d'émission est reportée en fonction du temps d'intégration jusqu'à 0,5 ; 3 et 10 microsecondes .

La composante rapide de scintillation est caractérisée par sa constante de temps de décroissance " decay time ",  $\tau$ , en nanoseconde, et par son intensité de scintillation (en photon/MeV), qui représente la contribution de cette composante au nombre total de photons émis par le scintillateur

Les échantillons correspondants aux mesures des exemples A à D et 1 à 3 et 5 sont des petits monocristaux, de l'ordre de  $10 \text{ mm}^3$ , et l'échantillon de l'exemple 4 est un monocristal relativement grand de 8 mm de diamètre et 5 mm de hauteur. On constate une bonne reproductibilité des résultats obtenus entre l'échantillon de petite (ex3) et de grande taille (ex4).

Du tableau 1, on constate que les composés de type  $M_{1-x}Ce_xCl_3$  comprenant moins de 1 mole % de cérium (exemples A, D) ont une résolution en énergie supérieure à 7 % et de faibles intensités de la composante rapide de scintillation (de l'ordre de 1500 ph/MeV). Le  $LaCl_3$  sans dopage a une constante de temps de décroissance de la première composante de l'ordre de 3500 ns (exC), donc extrêmement lente.

Dans le cas d'un composé fluoré dopé à plus de 1 mole % de cérium (exemple B), le déclin de scintillation est très rapide mais le rendement global de scintillation est très faible.

Les exemples selon l'invention, ex1 à ex5, présentent tous des constantes de temps de décroissance de la composante rapide de fluorescence très avantageuses, comprises entre 20 et 30 ns et l'intensité de scintillation de cette composante rapide est remarquable et est supérieure à 4000 ph/MeV. Elle atteint environ 20000 ph/MeV pour un matériau comprenant 10 mole % de cérium.

En outre la résolution, R, de ces exemples selon l'invention est excellente et revêt un caractère inattendu.

En effet, d'un point de vue statistique, il est admis que la résolution en énergie varie proportionnellement à l'inverse de la racine carrée du nombre total de photons émis. (voir notamment : G.F Knoll, "Radiation Detection and Measurement", John Wiley and Sons, Inc, 2<sup>nd</sup> édition, p 116). Ce nombre total de photons correspond à l'intensité d'émission à saturation que mesure la valeur d'intensité d'émission à 10  $\mu$ s.



En considérant le nombre total de photons émis par  $\text{LaCl}_3$  comprenant plus de 1 mole % de cérium comparé à  $\text{LaCl}_3$  dopé à 0,57 mole % on s'attend à une faible amélioration relative de la résolution d'au mieux 5 %, celle ci passant donc de 7,3% à environ 6,9%

5 De manière particulièrement surprenante, les inventeurs ont constaté une amélioration considérable de la résolution en énergie pour un taux de cérium supérieur à 1 % en mole dans les matériaux  $\text{M}_{1-x}\text{Ce}_x\text{Cl}_3$ . Cette amélioration est environ d'un facteur 2 pour  $\text{LaCl}_3$  comprenant 2 mole %, 4 mole %, 10 mole %, 30 mole % de cérium (exemples 1 à 5).

10 Des matériaux scintillateurs ayant de telles performances sont particulièrement adaptés pour augmenter les performances des détecteurs, à la fois en terme de résolution en énergie, de résolution temporelle et de taux de comptage.

Exemple	Matrice	x : mole % Ce <sup>3+</sup>	Intensité d'émission ( photons/MeV)			Résolution : (R %)	Composante rapide	
			0,5 $\mu$ s	3 $\mu$ s	10 $\mu$ s		$\tau$ (ns)	Intensité (ph/MeV)
A	LuCl <sub>3</sub>	0,45	1300	3500	5700	18	50	1425
B	LaF <sub>3</sub>	10	2200	2200	2200	> 20	3	220
C	LaCl <sub>3</sub>	0			34000	4,9	3480	34000
D	LaCl <sub>3</sub>	0,57	19000	37000	44000	7,3	24	1300
ex1	LaCl <sub>3</sub>	2		44000	49000	3,7	27	4900
ex2	LaCl <sub>3</sub>	4	36000	47000	49000	3,4	25	8800
ex3	LaCl <sub>3</sub>	10	45000	49000	49000	3,7	26	20100
ex4	LaCl <sub>3</sub>	10	45000	49000	49000	3,3	26	18500
ex5	LaCl <sub>3</sub>	30	42000	43000	43000	3,3	24	29700

Tableau 1

## REVENDEICATIONS

1. Matériau scintillateur inorganique de composition générale  $M_{1-x}Ce_xCl_3$ ,  
où M est choisi parmi les lanthanides ou les mélanges de lanthanides, de  
préférence parmi les éléments ou les mélanges d'éléments du groupe : Y, La, Gd,  
5 Lu, notamment parmi les éléments ou les mélanges d'éléments du groupe : La,  
Gd, Lu,  
et où x est le taux molaire de substitution de M par du cérium, avec x  
supérieur ou égal à 1 mole % et strictement inférieur à 100 moles %.
2. Matériau scintillateur selon la revendication 1, **caractérisé en ce que M**  
10 **est du lanthane, (La).**
3. Matériau scintillateur selon l'une quelconque des revendications  
précédentes, **caractérisé en ce que** sa résolution en énergie est inférieure à 6 %  
et même à 5 % pour une mesure avec des photons gamma à 662 keV.
4. Matériau scintillateur selon l'une quelconque des revendications  
15 précédentes, **caractérisé en ce que** x est inférieur ou égal à 90 mole %,  
notamment inférieur ou égal à 50 mole %, et voire même inférieur ou égal à 30  
mole %.
5. Matériau scintillateur selon l'une quelconque des revendications  
précédentes, **caractérisé en ce que** x est supérieur ou égal à 2 mole %, de  
20 préférence supérieur ou égal à 4 mole %.
6. Matériau scintillateur selon l'une quelconque des revendications  
précédentes, **caractérisé en ce que** le matériau scintillateur est un monocristal  
notamment supérieur à 10 mm<sup>3</sup>, voire supérieur à 1 cm<sup>3</sup>.
7. Matériau scintillateur selon l'une quelconque des revendications 1 à 5,  
25 **caractérisé en ce que** le matériau scintillateur est une poudre ou un polycristal.
8. Procédé de croissance du matériau scintillateur monocristallin selon la  
revendication 6, **caractérisé en ce que** le monocristal est obtenu par méthode de  
croissance Bridgman, notamment en ampoules de quartz scellées sous vide, par  
exemple à partir d'un mélange de poudres de  $MCl_3$  et  $CeCl_3$ .
- 30 9. Utilisation du matériau scintillateur selon l'une quelconque des  
revendications 1 à 7 comme composant d'un détecteur de scintillation notamment  
pour des applications dans l'industrie, le domaine médical et/ou la détection pour  
le forage pétrolier

10. Utilisation du détecteur de scintillation selon la revendication 9 comme élément d'un scanner à Tomographie d'Emission de Positron ou d'une Gamma Caméra de type Anger.